

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

APPLICANT: YOUNG SUNG YOO, ET AL)
)
FOR: SOLID OXIDE FUEL CELLS HAVING)
GAS CHANNEL)

CLAIM FOR PRIORITY

Mail Stop Patent Application
Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Commissioner:

Enclosed herewith is a certified copy of Korean Patent Application No. 2002-0065923 filed on October 28, 2002. The enclosed Application is directed to the invention disclosed and claimed in the above-identified application.

Applicants hereby claim the benefit of the filing date of October 28, 2002, of the Korean Patent Application No. 2002-0065923, under provisions of 35 U.S.C. 119 and the International Convention for the protection of Industrial Property.

Respectfully submitted,

CANTOR COLBURN LLP

By: 

David A. Fox
Reg. No. 38,807
Cantor Colburn LLP
55 Griffin Road South
Bloomfield, CT 06002
PTO Customer No. 23413
Telephone: (860) 286-2929
Fax: (860) 286-0115

Date: October 27, 2003



This is to certify that the following application annexed hereto is a true copy from the records of the Korean Intellectual Property Office.

출원번호 : 10-2002-0065923
Application Number

출원년월일 : 2002년 10월 28일
Date of Application OCT 28, 2002

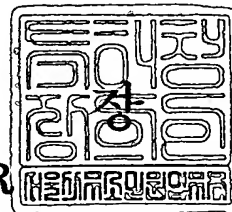
출원인 : 한국전력공사
Applicant(s) KOREA ELECTRIC POWER CORPORATION



2003 년 09 월 06 일

특 허 청

COMMISSIONER



【서지사항】

【서류명】 특허출원서
【권리구분】 특허
【수신처】 특허청장
【참조번호】 0004
【제출일자】 2002.10.28
【발명의 명칭】 가스채널구조를 갖는 고체산화물 연료전지의 단전지
【발명의 영문명칭】 End cell of solid oxide fuel cells with gas channel structure
【출원인】
【명칭】 한국전력공사
【출원인코드】 2-1999-900138-5
【대리인】
【성명】 김정용
【대리인코드】 9-2000-000146-4
【포괄위임등록번호】 2002-071390-5
【발명자】
【성명의 국문표기】 임희천
【성명의 영문표기】 LIM,HEE CHUN
【주민등록번호】 560515-1011227
【우편번호】 302-222
【주소】 대전광역시 서구 삼천동 가람아파트 13동 1101호
【국적】 KR
【발명자】
【성명의 국문표기】 유영성
【성명의 영문표기】 YOO,YOUNG SUNG
【주민등록번호】 620620-1057929
【우편번호】 305-390
【주소】 대전광역시 유성구 전민동 삼성푸른아파트 108동 301호
【국적】 KR
【발명자】
【성명의 국문표기】 박진우
【성명의 영문표기】 PARK,JIN WOO
【주민등록번호】 740918-1155412

【우편번호】 300-210
【주소】 대전광역시 동구 대성동 삼익세라믹아파트 106동 1201호
【국적】 KR
【발명자】
【성명의 국문표기】 박상현
【성명의 영문표기】 PARK,SANG HYOUN
【주민등록번호】 770528-1411218
【우편번호】 330-210
【주소】 충청남도 천안시 두정동 주공8단지 103동 203호
【국적】 KR
【심사청구】 청구
【취지】 특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사를 청구합니다. 대리인
김정용 (인)
【수수료】
【기본출원료】 20 면 29,000 원
【가산출원료】 6 면 6,000 원
【우선권주장료】 0 건 0 원
【심사청구료】 6 항 301,000 원
【합계】 336,000 원
【첨부서류】 1. 요약서·명세서(도면)_1통

【요약서】

【요약】

본 발명은 고체 산화물 연료전지(SOFC)에 있어서 단전지의 모서리 말단 전면(4면) 또는 대향하는 2면이 하향절곡("∩"자)형 인 것을 특징으로 하는 지지체형 또는 자립형 단전지를 이용함과 동시에 가스채널구조를 형성하여 별도의 가스채널 또는 채널받침이 없는 분리판을 사용하면서도 동시에 단전지 내부 또는 외부에 반응가스가 잘 흐를 수 있도록 하는 SOFC 구조에 관한 것이다.

이러한 기술은 종전의 SOFC 개발에서 어려운 문제인 분리판의 채널가공부분을 대폭 간소화할 수 있어 가공비용을 저렴화 시켰을 뿐만 아니라 분리판의 두께를 낮출 수 있어 동일한 크기에서 보다 높은 출력의 스택을 제작할 수 있게 한다. 또한 단전지의 장기성능에 해당하는 채널을 갖는 부위인 연료극 혹은 공기극에서의 고온 크립저항을 향상시켜 단전지의 수명을 향상시키는 부수적인 효과도 있다.

본 발명은 SOFC 연료전지의 특성상 스택 조립시 단전지와 분리판 중에 가스 채널구조를 필연적으로 가져야 하는 조건에서 분리판이 아닌 단전지에 채널구조를 갖게 함으로써 분리판에 채널을 갖게 할 때보다 스택 제작비용 및 스택의 크기를 줄이는데 효과적이다. 특히 종래의 모서리 말단 전면(4면) 또는 대향하는 2면이 하향절곡("∩"자)형 단전지가 밀봉기술을 용이하게 하는 특징이 있으나 프레스가공 상단 전지제작비용이 상승하는 단점이 있었으나, 본 발명에 따라 절곡부 성형과 동일한 방법인 채널구조를 동시에 갖게 함으로써 단전지의 제작비용의 상승과 분리판의 제작비용의 절감효과가 서로 보완되어 궁극적으로는 밀봉이 용이하면서 가스흐름이 원활하여 스택의 성능을 상승시키는 반면에 스택의 제작비용은 절감 내지는 보완된 새로운 형태의 SOFC 단전지 및 스택구조에 관한 것이다.



1020020065923

출력 일자: 2003/9/18

【대표도】

도 3a

【명세서】

【발명의 명칭】

가스채널구조를 갖는 고체산화물 연료전지의 단전지{End cell of solid oxide fuel cells with gas channel structure}

【도면의 간단한 설명】

도 1은 종래의 단순 평판형 자립형 구조의 SOFC 단전지(a) 및 스택구성(b)을 나타내는 모식도이다.

도 2는 종래의 사각 단전지의 모서리 4면(혹은 2면)이 하향절곡("∩"자)형인 단전지(a)와 이를 이용한 내부 매니폴드 형식의 스택 구성(b)을 나타내는 모식도이다.

도 3은 본 발명에 따라 사각 단전지의 모서리 4면(혹은 마주보는 2면)이 하향절곡("∩"자)형으로 단전지의 지지체에 반응가스 채널통로 구멍이 존재하는 단전지로서 (a)는 4면이 하향절곡형인 연료(음)극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체에 한쪽 방향으로 연료가스 채널통로가 있도록 제작한 단전지이며, (b)는 4면이 하향절곡형인 연료(음)극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체에 직교 방향으로 연료가스 채널통로가 있도록 제작한 단전지이며, (c)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 연료(음)극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체에 한쪽 방향으로 연료가스 채널통로가 있도록 제작한 단전지이며, (d)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 연료(음)극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체에 직교 방향으로 연료가스 채널통로가 있도록 제작한 단전지를 나타내는 모식도이다.

도 4는 도 3의 단전지 각각에서 절곡부의 2차원 단면모식도로서 (a)는 전해질의 지지체의 일부를 둘러싼 형태이며, (b)는 지지체의 절곡부 전체를 둘러싼 경우의 모식도이다.

도 5는 본 발명에 따라 사각 단전지의 모서리 4면(혹은 마주보는 2면)이 하향절곡("∩"자)형으로 단전지의 지지체에 반응가스 채널통로 구멍이 존재하는 단전지로서, (a)는 4면이 하향절곡형인 공기(양)극 지지체형 단전지로서 한쪽 방향으로 공기채널 통로가 있는 단전지이며, (b)는 4면이 하향절곡형인 공기(양)극 지지체형 단전지로서 직교 방향으로 공기 채널통로가 있는 단전지이며, (c)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 공기(양)극 지지체형 단전지로서 한쪽 방향으로 공기 채널통로가 있는 단전지이며, (d)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 공기(양)극 지지체형 단전지로서 직교 방향으로 공기 채널통로가 있는 단전지를 나타내는 모식도이다.

도 6은 본 발명에 따라 사각 단전지의 모서리 4면(혹은 마주보는 2면)이 하향절곡("∩"자)형으로 단전지의 지지체에 반응가스 채널통로 구멍이 존재하는 단전지로서 (a)는 4면이 하향절곡형인 전해질 지지체형 단전지로서 전해질 지지체에 채널통로가 있는 단전지이며, (b)는 4면이 하향절곡형인 전해질 지지체형 단전지로서 전해질 지지체에 직교방향 채널통로가 있는 단전지이며, (c)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 전해질 지지체형 단전지로서 전해질 지지체에 채널통로가 있는 단전지이며, (d)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 전해질 지지체형 단전지로서 전해질 지지체에 직교방향 채널통로가 있는 단전지를 나타내는 모식도이다.

<도면의 주요 부분에 대한 부호의 설명>

- 1 : 연료극(음극) 2 : 전해질
- 3 : 공기극(양극) 4 : 단전지
- 5 : 밀봉재 6 : 가스유로(채널)
- 7 : 채널받침 8 : 분리판(A)

- 9 : 분리판(B) 10 : 절연판
11 : 스택 12 : 밀봉재 홈
13 : 연료극 집전체 14 : 공기극 집전체
15 : 매니폴드 31 : 평판부
32 : 절곡부 33 : 지지부

【발명의 상세한 설명】**【발명의 목적】****【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】**

- <17> 본 발명은 가스채널구조를 갖는 고체 산화물 연료전지에 관한 것이다. 더욱 상세하게 본 발명은 고체 산화물 연료전지에 있어서 단전지의 모서리 말단 전면을 하향절곡("∩"자)형인 전극 지지체형 또는 전해질 지지형 단전지를 이용함과 동시에 반응가스가 단전지 내부 혹은 외부로 채널구조를 갖는 고체 산화물 연료 전지 단전지 및 스택 구조에 관한 것이다.
- <18> 일반적으로 연료전지는 연료가스와 공기가 음극과 양극으로 주입되어 각각 전기화학 반응을 일으키면서 전해질을 통한 이온전도가 진행되고 외부회로를 통해 전자전도가 진행되어, 전극 및 전해질 특성에 맞는 조건하에서 연료와 공기주입이 유지되는 한 계속하여 전기를 얻을 수 있는 에너지 발생장치이다. 연료전지는 고효율의 발전방식이고 공해물질 배출이 매우 적은 장점이 있으며, 사용하는 전해질의 종류에 따라 작동온도 및 전극재료, 그리고 응용분야가 다양하게 존재한다.
- <19> 이중 제 3세대 연료전지라고 할 수 있는 고체 산화물 연료전지(Solid Oxide Fuel Cell : SOFC)라 함은 단전지 양쪽 전극면으로의 원활한 반응가스의 흐름과 함께 분리판과의 전기적 접

촉 그리고 두 종의 반응가스 간의 기밀을 유지함으로써 치밀한 고체 전해질 층으로의 산소(또는 수소)이온전도현상을 유도하고 이로부터 전극층에서 일어나는 전기화학반응에 의해 발생하는 기전력을 발전에 이용하는 장치이다.

<20> 특히 고체 산화물 연료전지는 열화학적으로 안정한 금속산화물을 전해질(electrolyte)로 이용하고 여기에 연료극과 공기극이 부착된 형태로써 수소, 메탄, 프로판, 부탄 등의 연료가스를 개질 없이 사용할 수 있으며 산화제로써 공기 혹은 산소를 이용하는 고효율 저공해 발전 방식이다.

<21> 지금까지 잘 알려진 SOFC 재료는 연료극(Ni+YSZ Cermet)과 전해질(지르코니아($ZrO_2 + 8Y_2O_3$)계, 세리아(CeO_2)계, 비스무스산화물(Bi_2O_3)계, 페로브스카이트(perovskite)계 등과, 공기극($LaSrMnO_3$), 분리판[separator 혹은 접속자(interconnector); Cr-5Fe-1 Y_2O_3 , Ni base metal, stainless steel, $LaSrMnO_3$ 등] 그리고 집전체와 밀봉재(glass or glass-ceramics) 등으로 구성되어 있고 이들이 서로 적층되어 스택(stack)을 이루며 다른 주변장치들과 결합되어 전체 발전시스템이 구성된다.

<22> 이때 사용되는 단전지는 전해질을 사이에 두고 한 쪽에는 연료극(음극), 다른 쪽은 공기극(양극)을 붙인 형태로써 각각의 전극층에서는 전기화학반응이 용이하게 일어나기 위해서 다공성 구조를 갖게 하고, 전해질에 해당하는 중간층에서는 연료가스와 산화가스가 서로 통기하지 않는 치밀한 구조를 갖게 한다.

<23> 일반적으로 고체 산화물 연료전지에는 단전지의 형태에 따라 튜브형과 평판형이 주로 개발되고 있는데 이중 튜브형이 먼저 개발되기 시작하였으나 방법이 까다로워 실질적인 실용화에 어려움이 있다. 한편 평판형에서는 일반적으로 분리판을 사용하여 연료가스와 산화가스를 분리하여 단전지에 공급하며, 또한 이때의 분리판에는 발생한 전기가 잘 흘러야 하기 때문에 전

기적으로 저항이 작아야 한다. 또한 스택을 제작하고자할 때에는 평판형의 단전지를 분리판 사이에 놓고 분리판 양쪽 채널을 따라 흐르는 두 종의 가스가 서로 섞이지 않도록 밀봉재(혹은 밀봉유리)를 이용하여 기밀을 유지함과 동시에 단전지의 양쪽 전극층에서는 원활한 가스공급이 이루어져야 한다. 특히 단전지와 접촉하지 않는 분리판의 나머지 부분에는 기밀성과 절연성을 갖는 재료로서 절연층 내지는 절연판을 삽입한 형태를 취해야 한다.

<24> 한편 이때 쓰여지는 분리판의 소재는 금속과 세라믹 재료가 있는데, 가스 기밀성을 유지하는 치밀한 소재이어야 하며 또한 고체 산화물 연료전지의 작동온도인 고온(400 내지 1000℃)에서의 내산화성을 가져야 한다. 이는 분리판의 역할이 연료가스(수소 등)와 산화제(공기)가 분리판을 사이에 두고 단전지의 한 쪽(윗)면에는 연료가스가, 다른 쪽(아래)면에서는 산화가스가 분리되어 단전지에 공급시키는 역할하면서 동시에 전기를 잘 흘려야 하는 이유 때문이다. 따라서 금속제 분리판을 사용하는 것이 가스기밀이나 경제성을 고려할 때 용이한 기술이 된다. 반면에 금속분리판의 비용 면에서 저가이면서 여러 가지 형태로의 제작이 용이하다는 장점이 있으나 SOFC가 동작하는 온도에서 단전지(세라믹스)의 열팽창 계수(약 $10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$) 값에 비하여 큰 1.2 내지 2배에 가까운 값을 갖기에 SOFC 발전장치를 켜거나 끌 때에는 상온에서 고온으로, 혹은 고온에서 상온으로의 온도변화(열 사이클)를 겪으며, 이에 따라 보다 큰 열응력이 유발되며, 또한 고온에서 산화 저항성이 작은 단점이 있다.

<25> 하지만 최근의 SOFC 기술은 보다 성능이 우수한 단전지가 개발됨에 따라 보다 낮은 온도에서도 종전과 동일한 성능을 얻을 수 있다. 따라서 금속 분리판 사용이 빈번해지고 있으나 금속의 경우는 세라믹 분리판이나 단전지에서와 같이 프레스 성형이 아닌 가공성형 위주로 제작되고 있어 연료전지에서 필수적인 구조인 가스채널을 가공하는데 많은 비용과 시간이 문제되고 있어 분리판의 제조비용이 전체 스택의 제조비용에 큰 비중을 차지하고 있는 실정이다.

【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

- <26> 본 발명의 지지체형 단전지는 모서리 말단 4면 또는 대향하는 2면이 하향절곡("∩"자)형으로 제작된 다공성의 연료(음)극(또는 공기(양)극) 지지체에 10 내지 50 μ m 두께의 치밀한 박막으로서 전해질을 피복하고 전해질이 피복된 상부에 다공성의 공기(양)극(또는 연료(음)극)을 피복한 것으로 3중막 또는 그 이상의 다중막으로 구성된 단전지로서 그 내부 또는 외부에 채널 구조를 갖는 SOFC를 제공하기 위한 것이다.
- <27> 이와 같은 단전지는 도 3 내지 6에서와 같고 도2의 단전지와 스택의 예(선행특허)에서와 같이 분리판 위에 가스유로(채널)가 형성된 홈 사이에 채널받침을 거치하고 단전지를 결합시키고 단전지와 분리판을 밀봉홈을 통하여 밀봉부위를 단순화하고 열응력의 해소를 위해 다공성 절연층(세라믹 절연 펠트)과 밀봉유리로 밀봉하면서 이를 필요에 따라 수직으로 연료전지를 제작한다. 따라서 종래의 단순 평판형 단전지를 이용한 경우에서 보다 가스밀봉이 필요한 부분을 분리하여 조절될 수 있어 전체스택을 재 승온 및 냉각하여 사용할 수 있으며 온도변화에도 내구성이 양호한 스택을 제조할 수 있다.
- <28> 하지만 도 2(a)의 단전지를 이용하여 도2(b) 형태의 스택을 제작할 시에 채널받침(7)과 분리판(8)의 채널구조가 부수적으로 거치되어야 한다. 이러한 분리판에서 채널구조는 분리판의 가격을 상승시키며, SOFC 스택의 제작비용을 높이는 단점이 있다. 따라서 도 2(b)의 단전지(4)에 채널구조의 제작 성형시 부터 갖게 하면 스택제작에 있어 연료극 혹은 공기극의 채널이 불필요한 분리판을 제작할 수 있어 값싼 금속분리판의 사용을 SOFC 스택제작에 이용될 수 있다.

【발명의 구성 및 작용】

- <29> 본 발명에서 단전지는 모서리 말단 4면 또는 대향하는 2면이 하향절곡("∩"자)형으로 제작된 다공성의 연료(음)극(또는 공기(양)극) 지지체에 10 내지 50 μ m 두께의 치밀한 박막으로서 전해질을 피복하고 전해질이 피복된 상부에 다공성의 공기(양)극(또는 연료(음)극)을 피복한 것으로 3중막 또는 그 이상의 다중막으로 구성된 단전지로서 그 내부 또는 외부에 채널구조를 갖는 SOFC인 것이다.
- <30> 따라서 이러한 단전지를 이용할 경우 분리판에서의 채널가공을 상하면 양면의 한쪽 내지는 전체를 제거할 수 있다. 이는 종래의 모서리 말단 4면 또는 대향하는 2면이 하향절곡("∩"자)형 단전지와 같이 스택 적층시 채널 받침과 분리판에서의 채널가공을 배제할 수 있어 비교적 저렴한 분리판의 제작과 분리판의 두께를 감소시킬수 있는 장점이 있다.
- <31> 이하, 첨부된 도면을 참고하여 본 발명을 보다 상세히 설명하기 위하여 바람직한 실시예로 상세히 기술하지만 이들 실시예가 본 발명의 기술적 범위를 한정하는 것은 아니다.
- <32> 본 발명에서 도 3은 본 발명에 따라 사각 단전지의 모서리 4면(혹은 마주보는 2면)이 하향절곡("∩"자)형으로 단전지의 지지체에 반응가스 채널통로 구멍이 존재하는 단전지로서 (a)는 4면이 하향절곡형인 연료(음)극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체에 한쪽 방향으로 연료가스 채널통로가 있도록 제작한 단전지이며, (b)는 4면이 하향절곡형인 연료(음)극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체에 직교 방향으로 연료가스 채널통로가 있도록 제작한 단전지이며, (c)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 연료(음)극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체에 한쪽 방향으로 연료가스 채널통로가 있도록 제작한 단전지이며, (d)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 연료(음)극 지지체형 단전지로서 연료극 지지체에 직교 방향으로 연료가스 채널통로가 있도록 제작한 단전지를 나타내는 모식도이다.

- <33> 도 4는 도 3의 단전지 각각에서 절곡부의 2차원 단면모식도로서 (a)는 전해질의 지지체의 일부를 둘러싼 형태이며, (b)는 지지체의 절곡부 전체를 둘러싼 경우의 모식도이다.
- <34> 도 5는 본 발명에 따라 사각 단전지의 모서리 4면(혹은 마주보는 2면)이 하향절곡("∩"자)형으로 단전지의 지지체에 반응가스 채널통로 구멍이 존재하는 단전지로서, (a)는 4면이 하향절곡형인 공기(양)극 지지체형 단전지로서 한쪽 방향으로 공기채널 통로가 있는 단전지이며, (b)는 4면이 하향절곡형인 공기(양)극 지지체형 단전지로서 직교 방향으로 공기 채널통로가 있는 단전지이며, (c)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 공기(양)극 지지체형 단전지로서 한쪽 방향으로 공기 채널통로가 있는 단전지이며, (d)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 공기(양)극 지지체형 단전지로서 직교 방향으로 공기 채널통로가 있는 단전지를 나타내는 모식도이다.
- <35> 도 6은 본 발명에 따라 사각 단전지의 모서리 4면(혹은 마주보는 2면)이 하향절곡("∩"자)형으로 단전지의 지지체에 반응가스 채널통로 구멍이 존재하는 단전지로서 (a)는 4면이 하향절곡형인 전해질 지지체형 단전지로서 전해질 지지체에 채널통로가 있는 단전지이며, (b)는 4면이 하향절곡형인 전해질 지지체형 단전지로서 전해질 지지체에 직교방향 채널통로가 있는 단전지이며, (c)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 전해질 지지체형 단전지로서 전해질 지지체에 채널통로가 있는 단전지이며, (d)는 마주보는 2면이 하향절곡형인 전해질 지지체형 단전지로서 전해질 지지체에 직교방향 채널통로가 있는 단전지를 나타내는 모식도이다.
- <36> 실시예 1 : 모서리 4면 또는 마주보는 2면이 하향절곡형이면서 반응가스 채널구조를 갖는 "∩"자형 염료(음)극 지지체형 단전지

<37> 절곡형 단전지라 함은 평판부(31)의 모서리 말단 4면(전면) 또는 마주보는 2면이 하향절곡형("∩"자형)이면서 동시에 상대적으로 두꺼운 연료극 지지체에 연료가스의 흐름을 용이하게 하는 채널을 갖는 단전지이다. 이는 절곡부(32)와 지지부(33)로 된 두께 1 내지 2mm 다공성의 연료(음)극(1)과 두께 10 내지 50 μ m의 치밀한 박막으로 지지부(33) 윗면과 모서리 전체에 전해질(2)을 피복하고, 전해질이 피복된 상부에 다공성의 공기(양)극을 피복한 것으로 중심부에는 전해질(2), 하부에는 연료(음)극(1), 상부에는 공기(양)극(3)으로 구성된 3중막의 단전지이다. 그리고, 여기에 구멍이 두개 존재하는 단전지이다. 이때 최종 단전지는 도 3(a), (b), (c) 및 (d)에서와 같은 형태로 제조하여 약 50×50mm 크기의 단전지를 두께 약 1.7mm, 하향으로 절곡된 모서리 부분의 높이는 약 2.5mm(내측 높이는 약 0.8mm), 절곡부의 넓이 방향 두께는 약 2mm가 되게 하였다.

<38> 이러한 1차 소결체인 연료극 지지체에 공지의 슬러리 코팅법과 화학기상증착법을 이용하여 지르코니아(ZrO_2)계, 세리아(CeO_2)계, 비스무스산화물(Bi_2O_3)계, 란타넘계 페로브스카이트(perovskite)계 중의 하나 또는 그 이상의 전해질을 코팅하여 약 1250℃에서 열처리하고 이를 1 내지 수회 반복 후 최종적으로는 1450℃ 내지 1600℃에서 최종 소결하여 약 10 내지 50 μ m 두께의 치밀한 전해질층을 제조한다. 이때 본 발명에서는 도 4(a)에 나타낸 바와 같이 치밀한 전해질층을 지지체의 상단부 표면과 지지체 절곡부의 모서리 옆면을 코팅하는 방법과 도 4(b)에서와 같이 절곡부 전체를 치밀한 전해질층으로 둘러싸서 SOFC 작동시 다공성의 지지체로부터 직접적인 연료가스의 누설을 방지함으로써 밀봉효과를 증대하였다.

<39> 또한 도 3(a), (b), (c), (d)[혹은 4(b)]에서와 같이 윗면에는 20%의 흑연 분말을 포함하는 LSM($La_{0.85}Sr_{0.15}MnO_3$) + YSZ 조성분말의 페이스트(paste)을 이용하여 공기(양)극을 스크린

인쇄하고 건조 후 1100℃에서 열처리하였다. 최종적으로 도 3(a),(b),(c),(d)[혹은 4(b)]에서와 같은 연료(음)극 지지체형 구조의 SOFC 단전지를 제조하였다.

<40> 스택 제작 조립을 위해서는 각각의 단전지는 동일한 크기를 갖도록 제작하는 것이 중요한데 절곡부의 크기와 높이는 각각의 단전지를 분리판과 접촉하고 밀봉하는 방법에 따라 재 가공될 수 있다. 특히 격자배열방식으로 단전지를 이어 붙여 스택의 한 층을 이루고자 할 때[도 1(b)]는 각각의 단전지의 두께와 절곡부의 높이는 동일한 크기로 제작되어야 한다. 본 실시예에서는 최종 단전지의 크기를 약 50×50mm 크기의 단전지로 하는 경우 절곡된 모서리부분의 높이는 약 2.5mm(내측 높이는 약 0.8mm)이었으며 단전지 안쪽의 가스채널의 골과 깊이 또한 약 1mm 내외로 하였으며 이는 단전지 제작시 프레스 금형의 크기와 열처리(소결)온도에 의존하였다. 이러한 단전지는 안쪽 채널의 가스분포를 일정하게 유지하며 전기적 접촉을 이루기 위해서는 집전층과 집전체를 사용하게 된다. 본 실시예에서는 다공성 금속 쉬이트(sheet)상과 메쉬(mesh)를 이용하여 분리판과의 접촉을 이루는데 용이하다.

<41> 실시예 2 : 모서리 4면 또는 마주보는 2면이 하향절곡형이면서 반응가스 채널 구조를 갖는 "∩"자형 공기(양)극 지지체형 단전지

<42> 먼저 공기(양)극 지지체를 제조하기 위해서 LSM($\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$) 조성의 분말을 선택하고 여기에 구형의 흑연 분말을 혼합하고, 이를 공지의 프레스 성형 및 열 처리조건으로 하여 최종적으로 약 40%의 다공성 공기 지지체를 제조하였다. 이러한 지지체는 도 5(a),(b), (c), (d)에서와 같은 형태로 제조하여 50×50mm 크기에 두께 약 1.7mm, 하향으로 절곡된 모서리 부분의 높이는 약 2.5mm(내측 높이는 0.8mm), 넓이방향 두께는 약 2mm가 되게 하였다. 이를 실시예 1에서와 같은 방법을 이용하여 도 5(a),(b), (c), (d)에 나타낸바와 같이 다공성 지지체에 치밀한 전해질층 형성시킨 후 다시 NiO 분말과 8YSZ(ZrO

$2 + 8\text{몰}\% \text{Y}_2\text{O}_3$)를 무게비로 약 50:50 혼합한 분말과 20%의 흑연 분말을 출발 원료로 실시예 1
 에서와 같은 인쇄법을 이용하여 최종적으로 도 5(a),(b), (c), (d)에서와 같은 공기(양)극 지
 지체형 구조의 SOFC 단전지를 제조하였다.

<43> 특히 도 5(a),(b),(c),(d)에서와 같이 가스채널이 한쪽 방향인지 양쪽 방향인지는 성형
 시 프레스 금형의 형태로 결정되어진다. 이하 실시예 1에서와 같다.

<44> 실시예 3 : 모서리 4면 또는 마주보는 2면이 하향절곡형이면서 반응가스 채널 구조를 갖
 는 "∩"자형 전해질 지지형 단전지

<45> 전해질 지지형(혹은 자립형) 단전지를 제조함에 있어서, 지르코니아(ZrO_2)계, 세리아
 (CeO_2)계, 비스무스산화물(Bi_2O_3)계, 페로브스카이트(perovskite)계 중의 하나 또는 그 이상의
 고체 전해질 원료분말을 20 내지 300 μm 크기로 조립화시킨 후 이를 사용하여 도
 6(a),(b),(c),(d)에서와 같은 형태가 되도록 성형한 후 소결하여 최종적으로 5 x 5 cm 크기에
 두께 약 1mm, 하향절곡된 모서리의 내측높이 2mm, 모서리 두께가 약 1 내지 2mm인 전해질 판을
 제작하였다. 이때 내측에는 원료분말의 성형시 프레스 금형의 형태에 따라 골의 폭과 깊이는 1
 mm과 0.5mm 각각 성형되고 이는 (a),(c)에서와 같이 한쪽방향의 채널이 있거나 (b),(d)에서와 같
 이 양 방향의 채널이 있는 구조로 제작된다.

<46> 여기에 통상의 방법으로 제조된 연료극 성분인 NiO 분말과 8YSZ($\text{ZrO}_2 + 8\text{몰}\% \text{Y}_2\text{O}_3$)를 무
 게 비로 약 50 : 50 혼합한 분말과 20%의 흑연 분말을 출발원료로 연료극 페이스트를 제조하였
 다. 이를 제조된 전해질의 판의 아래면, 특히 가스채널의 마루 또는 골에 각각 인쇄 내지는 도
 포하여 건조 후 1300 내지는 1450 $^{\circ}\text{C}$ 의 온도에서 열처리하여 연료극을 형성시켰다. 실시예 1에
 서와 마찬가지로 다시 공기극 재료인 LSM($\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$) + YSZ의 페이스트를 인쇄하여 건조

후 1100℃ 내외에서 열처리하여 소위 채널구조를 갖는 전해질 지지형(자립형) 구조의 SOFC 단전지를 제조하였다. 이하 실시예 1,2에서와 같다.

【발명의 효과】

- <47> 본 발명의 연료전지는 스택 적층시 분리판상의 채널구조를 단순화하여 분리판의 두께 및 비용을 저렴화 하는 장점이 있다. 따라서 상대적으로 같은 크기의 스택에 보다 많은 단전지를 적층할 수 있어 보다 큰 출력을 얻을 수 있다. 이는 특히 모서리 말단 4면 또는 대향하는 2면이 하향절곡("∩"자)형 단전지 제조시 지지체(공극극, 전해질, 연료극)에 대응하는 부분을 채널이 포함되도록 성형(프레스성형)함으로써 반응가스(연료 및 공기)가 흐르는 채널을 별도로 분리판에 가공하지 않아도 되게 하였다. 이러한 기술은 종전의 SOFC 개발에서 어려운 문제인 분리판의 제작비용이 높은 단점을 보완하여 저렴한 비용의 SOFC 스택을 제조하는 효과가 있다.
- <48> 또한 본 발명은 전체적으로 단전지의 형태를 개선하여 SOFC 스택의 가격을 저렴화할 수 있었으며 또한 보다 많은 분리판을 사용함으로써 스택의 크기를 줄여 궁극적으로는 수명과 내구성, 운전조건의 용이성을 향상시킨 효과가 있다.

【특허청구범위】

【청구항 1】

연료극(1), 전해질(2), 공기극(3)으로 구성된 고체 산화물 연료전지의 단전지(4)에 있어서, 단전지(4)의 모서리 말단 4면 또는 대향하는 2면이 하향절곡("∩"자)형으로 구성된 단전지에서 그 내부 또는 외부에 가스채널을 갖는 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지의 단전지.

【청구항 2】

제 1항에 있어서, 다공성의 연료극(1) 지지체에서 말단 부분이 수직으로 하향절곡되어 평판부(31)의 상면 전체와 절곡부(32)및 지지부(33)의 전체 또는 일부에 치밀한 전해질(2)을 피복하고, 전해질(2)이 피복된 상부에 다공성의 공기극(3)을 피복한 단전지(4)로서 3중막 또는 다중막으로 구성된 연료(음)극 지지체형인 것으로 그 내부의 연료극 지지체에 가스채널을 구조를 갖는 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지의 단전지.

【청구항 3】

제 1항에 있어서, 다공성의 공기극(3) 지지체에서 말단 부분이 수직으로 하향절곡되어 평판부(31)의 하면 전체와 절곡부(32)및 지지부(33)의 전체 또는 일부에 치밀한 전해질(2)을 피복하고, 전해질(2)이 피복된 하부에 다공성의 연료극(1)을 피복한 단전지(4)로서 3중막 또는 다중막으로 구성된 공기(양)극 지지체형인 것으로 그 외부의 공기극 지지체에 가스채널을 구조를 갖는 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지의 단전지.

【청구항 4】

제 2항 또는 제 3항에 있어서, 모서리 말단 4면 또는 대향하는 2면이 하향절곡("∩"자)형 지지체에 박막으로서 지르코니아(ZrO_2)계, 세리아(CeO_2)계, 비스무스산화물(Bi_2O_3)계, 페로브스카이트계 중의 하나 또는 그 이상의 전해질을 코팅하여 열처리함으로써 최종적으로 10 내지 $50\mu m$ 두께의 치밀한 전해질층을 제조하고, 전해질(2)이 피복된 상부에 공기극(3)을 피복하거나, 전해질(2)이 피복된 하부에 연료극(1)을 피복한 단전지(4)로서 3중막 또는 다중막으로 구성된 지지체형인 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지의 단전지.

【청구항 5】

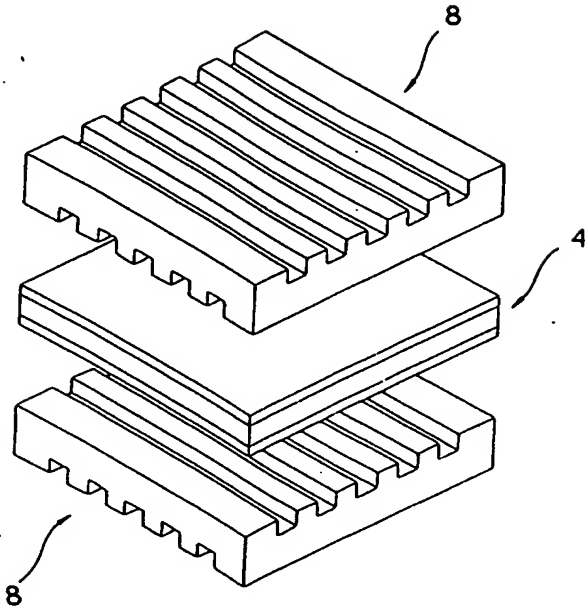
제 1항에 있어서, 전해질(2) 말단 부분이 수직하향으로 절곡되어 평판부(31)의 하부에는 연료극(1)을 피복하고 전해질(2)의 상부에는 공기극(3)을 피복한 단전지(4)로서 3중막 또는 다중막으로 구성된 전해질 지지형으로, 그 내부 또는 외부에 가스채널을 구조를 갖는 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지의 단전지.

【청구항 6】

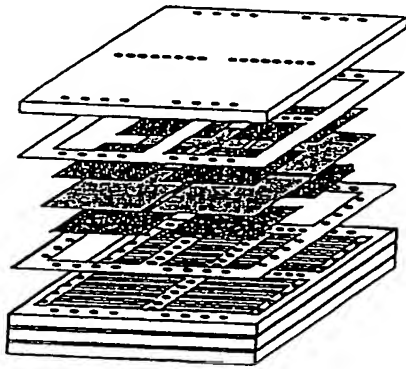
제 5항에 있어서, 지르코니아(ZrO_2)계, 세리아(CeO_2)계, 비스무스산화물(Bi_2O_3)계, 페로브스카이트계 중의 하나 또는 그 이상의 원료로 20 내지 $30\mu m$ 크기의 조립 분말을 사용하여, 모서리 말단 4면 또는 2면이 하향절곡("∩"자)형으로 두께 100 내지 $1000\mu m$ 범위의 전해질(2) 판을 제조하고, 전해질 평판부(31)의 하부에는 연료극(1)을, 전해질의 상부에는 공기극(3)을 피복한 단전지(4)로서 3중막 또는 다중막으로 구성된 전해질 지지형인 것을 특징으로 하는 고체 산화물 연료전지의 단전지.

【도면】

【도 1a】

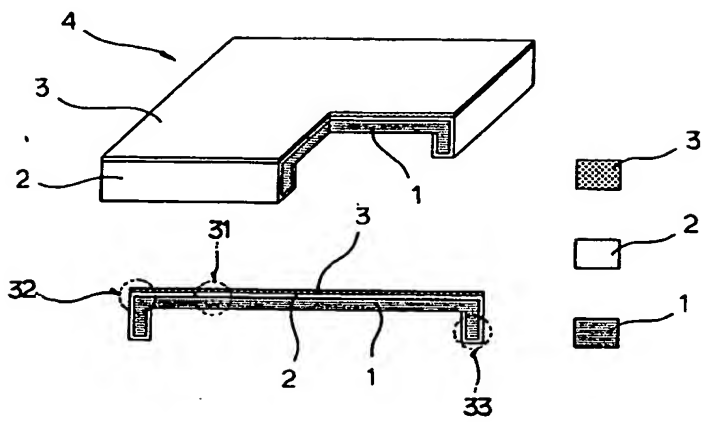


【도 1b】

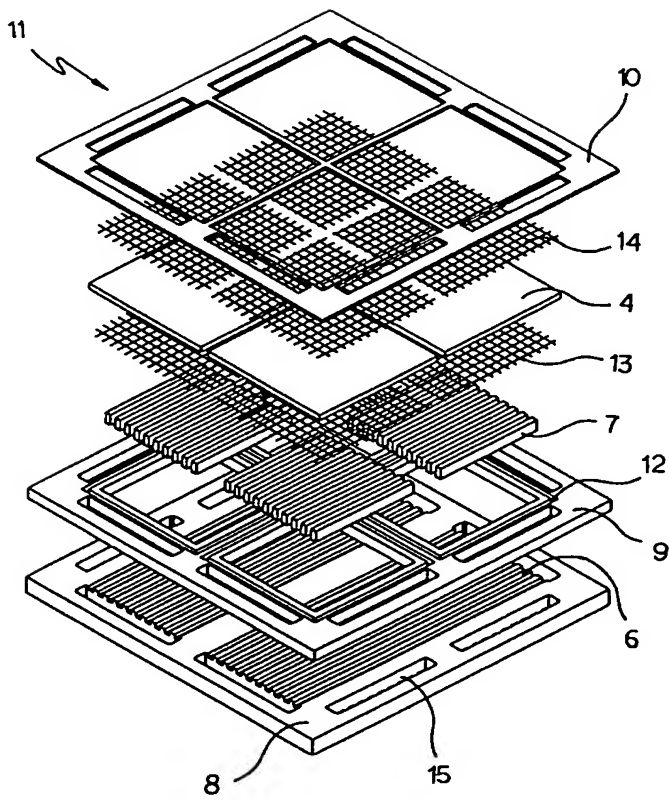




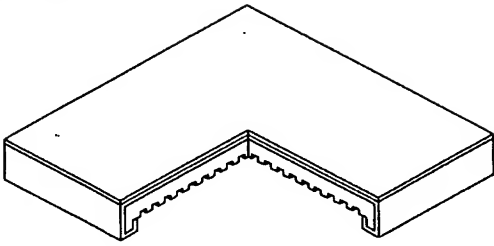
【도 2a】



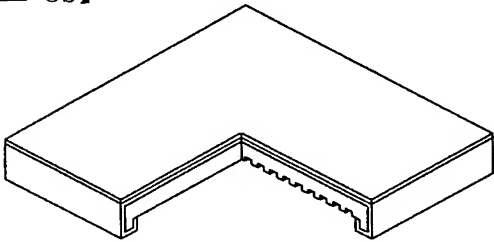
【도 2b】



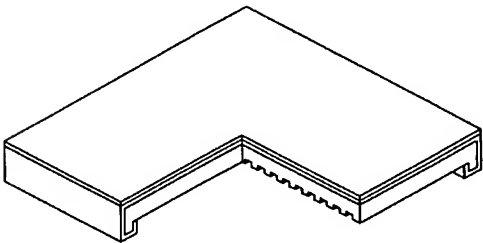
【도 3a】



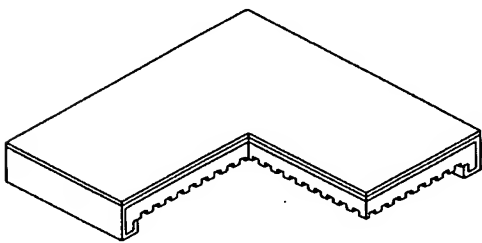
【도 3b】



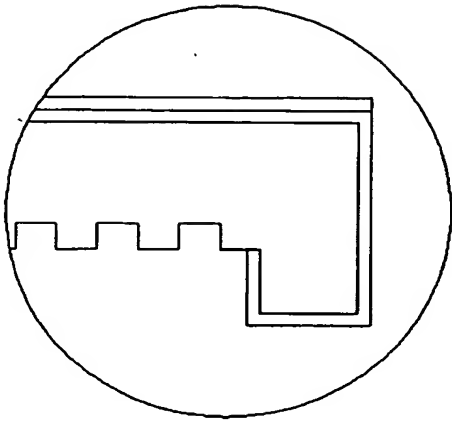
【도 3c】



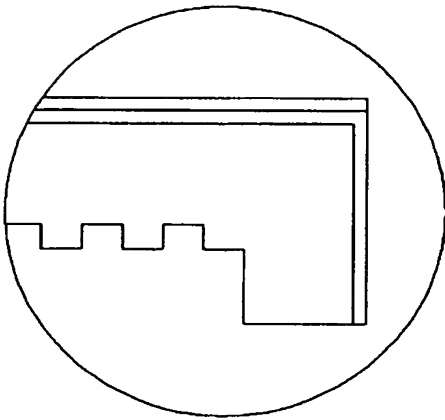
【도 3d】



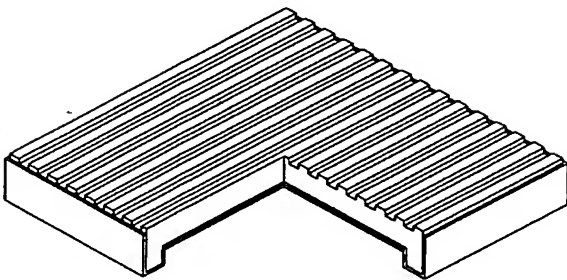
【도 4a】



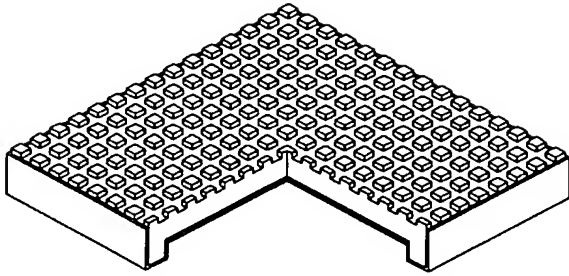
【도 4b】



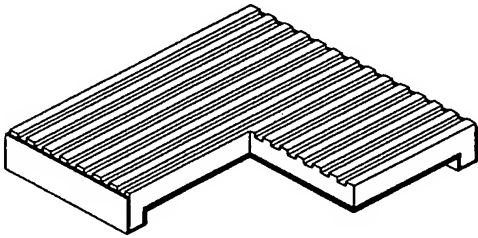
【도 5a】



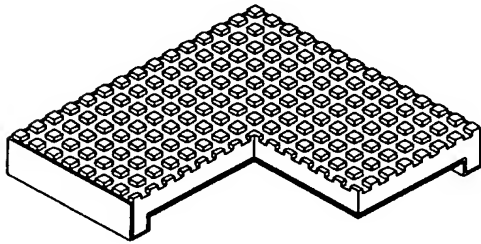
【도 5b】



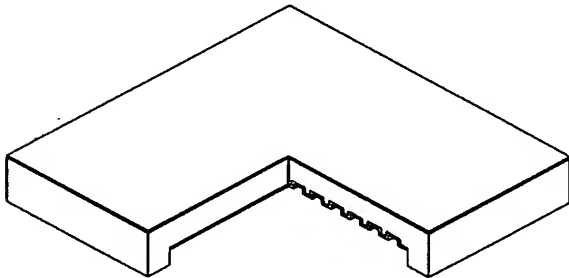
【도 5c】



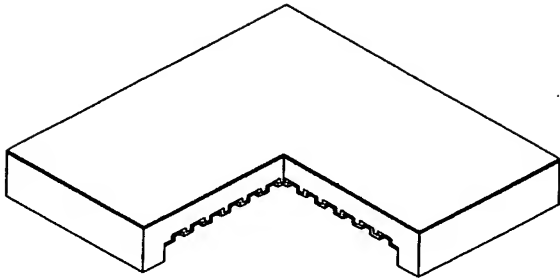
【도 5d】



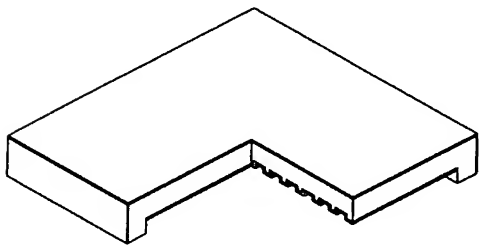
【도 6a】



【도 6b】



【도 6c】



【도 6d】

